

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2005 年 7 月 28 日 (28.07.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/069415 A1

- (51) 国際特許分類⁷: H01M 8/02, 8/12
(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/000295
(22) 国際出願日: 2005 年 1 月 13 日 (13.01.2005)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願2004-009061 2004 年 1 月 16 日 (16.01.2004) JP
特願2004-009062 2004 年 1 月 16 日 (16.01.2004) JP
特願2004-269456 2004 年 9 月 16 日 (16.09.2004) JP
特願 2004-379098 2004 年 12 月 28 日 (28.12.2004) JP
特願 2004-379099 2004 年 12 月 28 日 (28.12.2004) JP

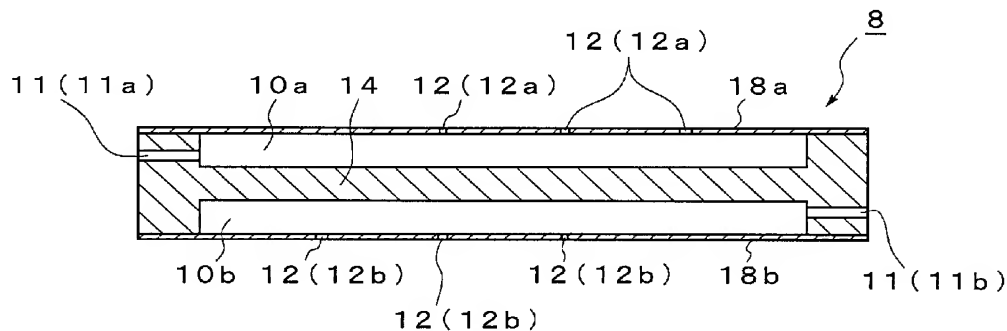
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱マテリアル株式会社 (MITSUBISHI MATERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町一丁目 5 番 1 号 Tokyo (JP). 関西電力株式会社 (THE KANSAI ELECTRIC POWER CO., INC.) [JP/JP]; 〒5308270 大阪府大阪市北区中之島 3 丁目 6 番 16 号 Osaka (JP).

- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 山田 喬 (YAMADA, Takashi) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). 山田 雅治 (YAMADA, Masaharu) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). アクベイ タナー (AKBAY, Taner) [TR/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). 星野 孝二 (HOSHINO, Koji) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). 宮澤 隆 (MIYAZAWA, Takashi) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). 小谷 尚史 (KOTANI, Takafumi) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). 駒田 紀一 (KOMADA, Norikazu) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂郡那珂町向山 1 0 0 2-1 4 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP). 村上 直也 (MURAKAMI, Naoya) [JP/JP]; 〒3110102 茨

[続葉有]

(54) Title: SEPARATOR FOR FUEL CELL, METHOD OF PRODUCING SEPARATOR, AND SOLID OXIDE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池用セパレータ、セパレータの製造方法および固体酸化物形燃料電池



(57) Abstract: Gas discharge openings are provided in almost the entire area of a layer surface of a separator, and a gas for reaction is discharged like a shower from the gas discharge openings toward a power generation cell. The separator is constructed by layering plate-like members containing iron-base alloy, nickel-base alloy, or chrome-base alloy as the base material. Silver, silver alloy, copper, or copper alloy is plated on both sides or one side of the base material of a plate-like member. The construction above can increase durability of a separator and enables the separator and a solid oxide fuel cell to be stably used for a long period.

(57) 要約: ガス吐出口がセパレータの積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口から反応用のガスが発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっている。また、セパレータは、鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を母材とする複数の板状部材を積層することにより構成され、それら板状部材の母材の両面または片面には、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキが施されている。このような構成によれば、セパレータの耐久性を向上させることができ、セパレータおよび固体酸化物形燃料電池を長期に亘って安定的に使用することができる。

WO 2005/069415 A1



城県那珂郡那珂町向山 1002-14 三菱マテリアル株式会社 総合研究所那珂研究センター内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 清水 千春 (SHIMIZU, Chiharu); 〒1040061 東京都中央区銀座 8 丁目 1 6 番 1 3 号 中銀・城山ビル 4 階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 *PCT* ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

燃料電池用セパレータ、セパレータの製造方法および固体酸化物形燃料電池

技術分野

[0001] 本発明は、燃料電池用のセパレータおよびその製造方法、並びに固体酸化物形燃料電池(SOFC:Solid Oxide Fuel Cell)に関するものである。

背景技術

[0002] 周知のように、固体酸化物形燃料電池は第三世代の発電用燃料電池として研究開発が進められている。この固体酸化物形燃料電池の構造には、円筒型、モノリス型および平板積層型の3種類が現在のところ提案されているが、これら構造のうち、低温作動型の固体酸化物形燃料電池には、平板積層型の構造が広く採用されている。

[0003] この平板積層型の固体酸化物形燃料電池においては、発電セルとセパレータとが、集電体を間に挟む状態で交互に積層されて燃料電池スタックが構成されている。発電セルは、酸化物イオン伝導体からなる固体電解質層を空気極(カソード)層と燃料極(アノード)層との間に挟んだ積層構造を有する。この発電セルの空気極側には、酸化剤ガスとしての酸素(空気)が供給される一方、燃料極側には、燃料ガス(H_2 、 CH_4 等)が供給されるようになっている。空気極と燃料極は、酸素および燃料ガスが固体電解質との界面に到達することができるように、いずれも多孔質とされている。

[0004] 一方、セパレータは、発電セル間を電気接続するとともに、発電セルに対して反応用のガスを供給する機能を有するもので、その外周部から燃料ガスを導入して燃料極層と対向する面から吐出させる燃料通路と、酸化剤ガスとしての空気を外周部から導入して空気極層と対向する面から吐出させる酸化剤通路とを備えている。このセパレータと発電セルの空気極との間には、Ag基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板等からなる空気極集電体が配置され、セパレータと発電セルの燃料極との間には、Ni基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板等からなる燃料極集電体が配置されている。

[0005] 上記構成からなる固体酸化物形燃料電池においては、セパレータおよび空気極集

電体を介して発電セルの空気極側に供給された酸素が、空気極層内の気孔を通して固体電解質との界面近傍に到達し、この部分で、空気極から電子を受け取って酸化物イオン(O^{2-})にイオン化される。この酸化物イオンは、燃料極の方向に向かって固体電解質内を拡散移動する。燃料極との界面近傍に到達した酸化物イオンは、この部分で、燃料ガスと反応して反応生成物(H_2O 等)を生じ、燃料極に電子を放出する。この電子を燃料極集電体により取り出すことによって電流が流れ、所定の起電力が得られる。

[0006] ところで、この種の固体酸化物形燃料電池の中には、発電セルの外周部のガス漏れ防止シール(従来では主にガラスシールが使用されている)を無くしたシールレス構造の固体酸化物形燃料電池がある。このシールレス構造の固体電解質型燃料電池においては、セパレータの中心部に燃料ガスや酸化剤ガス(反応用のガス)の吐出口を設けて、当該吐出口から吐出された反応用のガスを発電セルの外周方向に拡散させながら燃料極層及び空気極層の全面に良好な分布で行き渡らせて発電反応を生じさせるとともに、この発電反応によって生成されたガスや発電反応に使用されなかった残余のガスを、発電セルの外周部から外に放出するようになっている(例えば、特許文献1参照)。

[0007] しかしながら、上記シールレス構造の固体酸化物形燃料電池において、上述したように、セパレータの中心部に反応用ガスの吐出口を設けた場合には、吐出口に近い中心部をピークとして外周部に向かうに連れてガス濃度が低下するという現象が発生し、その結果、セル面内で電極反応が均一に行われずに、セル面内における電流密度分布に偏りが生じて、発電セルの発電効率(単位面積当たりの出力密度)が著しく低下するという問題点があった。また、発熱反応となる電極反応がセル面内において均一に行われないことにより、発電セル内に温度勾配が生じ、その際の熱応力によって発電セルが破損する虞もあった。

[0008] 他方、平板積層型の固体酸化物形燃料電池においては、その作動温度が $800^{\circ}C$ 以下の低温に設定されている場合、上記セパレータとして、ステンレス鋼製のセパレータが採用されることが多い。

[0009] しかしながら、上記ステンレス鋼製のセパレータを採用した燃料電池において、燃

料ガスとしてメタンガス等の炭化水素化合物を用いると、改質反応により炭素や炭素酸化物が生成されて、それら生成物により、セパレータの燃料通路壁面など、燃料ガスに曝される部分が浸炭してセパレータが早期に劣化してしまうという問題点があった。

特許文献1:特開平11-016581号公報

発明の開示

- [0010] 本発明は、かかる事情に鑑みてなされたもので、その主たる目的は、耐久性に優れ、長期に亘って安定的に使用することが可能な燃料電池用セパレータおよび固体酸化物形燃料電池を提供することにある。より具体的には、セル面内におけるガス濃度の均一化を図ることができ、これによって、発電効率を向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化して発電セルの破損を防止することができる燃料電池用セパレータおよび固体酸化物形燃料電池を提供することを本発明の第一の目的とする。また、耐浸炭性に優れ、燃料ガスとしてメタンガス等の炭化水素化合物を用いる場合においても、浸炭による劣化を抑制することができる燃料電池用セパレータおよびその製造方法、並びに固体酸化物形燃料電池を提供することを本発明の第二の目的とする。
- [0011] 上記目的を達成するため、本発明の第1の態様に係る燃料電池用のセパレータは、発電セルと交互に積層配置され、その積層面に、反応用のガスを吐出するガス吐出口を有する燃料電池用のセパレータであって、上記ガス吐出口が上記積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口から上記反応用のガスが上記発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっていることを特徴とするものである。また、本発明の第1の態様に係る固体酸化物形燃料電池は、発電セルとセパレータとを交互に積層してなる燃料電池スタックを有し、上記発電セルの各々に反応用のガスを供給して発電反応を生じさせる固体酸化物形燃料電池において、セパレータとして、本発明の第1の態様に係る燃料電池用のセパレータを用いたことを特徴とするものである。
- [0012] ここで、上記セパレータは、例えば、上記反応用のガスを受け入れる中空部を設け、当該中空部を介して上記反応用のガスが上記ガス吐出口の各々に導かれるように

構成することが可能である。

上記ガス吐出口の配列方法としては、例えば、ガス導入口の位置から放射状に延びる複数の仮想線に沿って上記ガス吐出口をそれぞれ配列する方法や、ガス導入口を中心とする複数の仮想同心円に沿って上記ガス吐出口をそれぞれ配列する方法、上記積層面の中心部から放射状に延びる複数の仮想線に沿って上記ガス吐出口をそれぞれ配列する方法、上記積層面の中央部に中心を有する複数の仮想同心円に沿って上記ガス吐出口をそれぞれ配列する方法などが挙げられる。

[0013] あるいは、上記セパレータに、上記反応用のガスを誘導する内部流路を設け、当該内部流路に沿って上記ガス吐出口を形成するようにしてもよい。この場合、上記内部流路は、外周部に起点を有する螺旋状の流路としたり、上記積層面の径方向における一端から他端に向けて葛折り状に屈曲する流路とすることが可能である。また、外周部のガス導入口から放射状に分岐する複数の流路によって上記内部流路を構成することも可能である。何れの場合においても、上記内部流路の上流側から下流側に向けて、上記ガス吐出口の穴径が大きくなるように設定することが望ましい。

[0014] また、上記中空部や上記内部流路の壁面には、アルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理を施すことが好ましい。

[0015] 本発明の第1の態様によれば、セパレータの積層面のほぼ全域に亘って複数のガス吐出口が設けられ、それらガス吐出口から反応用のガス(燃料ガス、酸化剤ガス)が発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっているので、セル面内におけるガス濃度を均一化することができる。したがって、電極反応の偏りを抑制して、セル面内における電流密度を均一化することができ、これにより、単位面積当たりの出力密度を増大させて発電セル全体としての発電効率を大幅に向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化して、熱応力による発電セルの破損を防止することができる。

また、反応用のガスに曝されるセパレータの中空部または内部流路の壁面にアルミニウム拡散被膜処理を施したので、当壁面の耐高温腐食性は大幅に向上し、酸化や浸炭によるセパレータの劣化を防止することができる。

[0016] 本発明の第2の態様に係る燃料電池用のセパレータは、溝孔が設けられた板状部

材を含む複数の板状部材を積層してなり、それら板状部材の積層により上記溝孔の開口が覆われることによって、反応用のガスを誘導する内部流路が形成された燃料電池用のセパレータであって、上記板状部材の母材として、鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を用いるとともに、当該母材の両面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなることを特徴とするもの、若しくは、上記板状部材の母材として、鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を用いるとともに、積層時に、これら複数の板状部材が互いに接する面の何れか一方の面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなることを特徴とするものである。また、本発明の第2の態様に係る固体酸化物形燃料電池は、発電セルとセパレータとを交互に積層してなる燃料電池スタックを有し、上記発電セルの各々に反応用のガスを供給して発電反応を生じさせる固体酸化物形燃料電池において、セパレータとして、本発明の第2の態様に係る燃料電池用のセパレータを用いたことを特徴とするものである。

[0017] ここで、上記セパレータの製造方法としては、上記板状部材の母材となる鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金の両面または片面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施し、これをプレス加工することにより上記板状部材をそれぞれ成形し、その後、成形した板状部材を積層して、その積層面におけるメッキを軟化または溶融させることにより、それら板状部材を相互に接合して一体化する製造方法を採用することが可能である。

[0018] なお、上記内部流路の壁面については、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキ処理に替えて、その鉄基合金、ニッケル基合金、あるいはクロム基合金の母材の表面にアルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理を施すようにしてもよい。

[0019] 本発明の第2の態様によれば、セパレータの表面だけでなく、内部流路の壁面など、燃料ガスに曝される部分すべてに銀または銅または各々の合金のメッキが施された状態となるので、セパレータの耐浸炭性を大幅に向上させることができ、燃料ガスとしてメタンガス等を用いる場合においても、浸炭によるセパレータの劣化を抑制することができる。

また、板状部材の両面または片面に銀または銅または各々の合金のメッキを施すようにしたので、セパレータを加熱して、板状部材の積層面におけるメッキを軟化また

は溶融させることにより、板状部材どうしを容易に接合することができ、セパレータの生産効率の向上を図ることができる。

また、特に、内部流路の壁面については、銀または銅または各々の合金のメッキ処理に替えてアルミニウム拡散被膜処理を施すようにしたので、セパレータの耐高温腐食性をより一層向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]本発明に係る固体酸化物形燃料電池の第1の実施形態を示す分解斜視図である。

[図2]図1のセパレータを示す縦断面図である。

[図3]図1の端板を示す縦断面図である。

[図4]ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。

[図5]ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。

[図6]ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。

[図7]ガス吐出口の配列パターンの一例を示す平面図である。

[図8]図2のセパレータの変形例を示す平面図である。

[図9]図2のセパレータの変形例を示す平面図である。

[図10]図2のセパレータの変形例を示す平面図である。

[図11]本発明に係る固体酸化物形燃料電池の第2の実施形態を示す要部構成図である。

[図12]図11のセパレータを示す分解斜視図である。

[図13]板状部材のメッキ処理の一例を示す説明図である。

符号の説明

- [0021] 1 燃料電池スタック
 5 発電セル
 8(8A、8B、8C、8D、8E、8F、8G、8H) セパレータ
 10(10a、10b) 中空部
 11(11a、11b) ガス導入口
 12(12a、12b) ガス吐出口

13、20a、20b 内部流路

21、22、23 板状部材

24、25 溝孔

発明を実施するための最良の形態

[0022] [第1の実施形態]

図1は、本発明に係る固体酸化物形燃料電池の第1の実施形態を示すもので、図中符号1は燃料電池スタックである。この燃料電池スタック1は、図1に示すように、固体電解質層2の両面に燃料極層3及び空気極層4を配した発電セル5と、燃料極層3の外側の燃料極集電体6と、空気極層4の外側の空気極集電体7と、各集電体6、7の外側のセパレータ8(最上層及び最下層のものは端板9である)とを順番に積層した構造を持つ。この燃料電池スタック1では、発電セル5の外周部にガス漏れ防止シールを取って設けないシールレス構造を採用している。

[0023] ここで、固体電解質層2はイットリアを添加した安定化ジルコニア(YSZ)等で構成され、燃料極層3はNi、Co等の金属あるいはNi-YSZ、Co-YSZ等のサーメットで構成され、空気極層4は LaMnO_3 、 LaCoO_3 等で構成され、燃料極集電体6はNi基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成され、空気極集電体7はAg基合金等のスポンジ状の多孔質焼結金属板で構成されている。

[0024] セパレータ8は、ステンレス等により略円盤状に形成されている。このセパレータ8の内部には、図2に示すように、第1および第2中空部10a、10bが設けられ、それら中空部10a、10bが隔壁14によって遮断されている。セパレータ8の外周部には、燃料用マニホールド(図示省略)から第1中空部10aに燃料ガスを導入するガス導入口11aと、酸化剤用マニホールド(図示省略)から第2中空部10bに酸化剤ガスとしての空気を導入するガス導入口11bとが設けられている。また、セパレータ8の積層面18a、18bには、それぞれガス導入口11a、11bから各中空部10a、10b内に導入した反応用のガスを吐出するガス吐出口12a、12bが、当該積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口12a、12bから上記反応用のガスが発電セル5に向けてシャワー状に吐出するようになっている。なお、端板9の場合には、図3に示すように、第1および第2中空部10a、10bの何れか一方が設けられ、集電体6、7と隣接する面

に、そのほぼ全域に亘って複数のガス吐出口12a、12bが設けられている。

[0025] 本実施形態では、セパレータ8の母材にステンレス(鉄基合金)が用いられ、その内部に形成された第1中空部10aや第2中空部10bの壁面(母材の表面)にはアルミニウム拡散被膜処理が施されている。このアルミニウム拡散被膜処理とは、母材表面にアルミニウムを拡散浸透させ、Fe-Al合金層を形成する金属表面処理のことであって、例えば、母材をFe-Al合金粉と NH_4Cl 粉より成る調合剤とともに鋼製の密閉ケース内に埋め込み、加熱処理することにより行われる。このFe-Al合金層により、当壁面の耐高温酸化性および耐浸炭性を大幅に向上させることができる。

[0026] ガス吐出口12(12a、12b)の配列パターンとしては、例えば、図4ー図7に示すような配列パターンを採用することが可能である。

図4のセパレータ8Aでは、ガス導入口11(11a、11b)の位置から放射状に延びる複数の仮想線L、或いはガス導入口11を中心とする複数の仮想同心円(円弧)Cに沿って、それぞれガス吐出口12が配列されている。すなわち、このセパレータ8Aでは、各仮想線Lと各仮想同心円Cとが交差する位置にガス導入口11が配置されている。このセパレータ8Aにおいては、隣接する仮想線Lどうしのなす角度が一定となるように設定されるとともに、隣接する仮想同心円Cどうしの間隔が一定となるように設定されている。また、ガス導入口11には、穴径が大・中・小の3種類が用意されており、ガス導入口11から遠くなるに連れてガス吐出口12の穴径が大きくなるように設定されている。すなわち、各ガス吐出口12のガス吐出量がほぼ一定となるように各々の穴径が設定されている。

[0027] また、図5のセパレータ8Bでは、図4のセパレータ8Aと同様、各仮想線Lと各仮想同心円Cとが交差する位置にガス導入口11が設けられている。この図5のセパレータ8Bでは、ガス導入口11とセパレータ8Bの中心点Pとを通る線分を第1線分l1、この第1線分l1と上記中心点Pで直交し且つ中空部10の直径に相当する長さを有する線分を第2線分l2として、この第2線分l2を等間隔に分割する分割点の各々を通るように、ガス導入口11の位置から放射状に複数の仮想線Lが引かれている。また、このセパレータ8Bにおいては、上記分割点から外周方向(中空部10の外周と仮想線Lとの交点の方向)に延びる補助線分H上にもガス導入口11が設けられている。

[0028] 他方、図6および図7のセパレータ8C、8Dでは、セパレータ8C、8Dの中心部から放射状に延びる複数の仮想線L、或いはセパレータ8C、8Dの中心部に中心を有する複数の仮想同心円Cに沿って、ガス吐出口12がそれぞれ配列されている。これらセパレータ8C、8Dにおいては、隣接する仮想線Lどうしのなす角度が一定となるように設定されるとともに、隣接する仮想同心円Cどうしの間隔が一定となるように設定されている。また、ガス導入口11には、穴径の大小異なる2種類のガス導入口が用意されており、上記第2線分12を境に2分割される領域のうちガス導入口11側の領域R1にあるガス吐出口12と、上記第2線分上のガス吐出口12には、穴径の小さいガス導入口が用いられ、ガス導入口11と反対側の領域R2にあるガス吐出口12には、穴径の大きいガス導入口が用いられている。すなわち、ガス導入口11から遠くなるに連れてガス吐出口12の穴径が大きくなるように設定されている。

[0029] また、セパレータ8としては、上述した中空部10a、10bの代わりに、例えば、図8ー図10に示すように、反応用のガスを誘導する内部流路13を有し、当該内部流路13に沿ってガス吐出口12が設けられたセパレータを用いることも可能である。

図8のセパレータ8Eでは、内部流路13が、外周部に起点を有する螺旋状の流路となっており、図9のセパレータ8Fでは、内部流路13が、積層面の径方向における一端から他端に向けて葛折り状に形成されている。また、図10のセパレータ8Gにおいては、内部流路13が、外周部のガス導入口11から放射状に分岐する複数の流路によって構成されている。何れのセパレータ8E、8F、8Gにおいても、内部流路13の上流側から下流側に向けて、ガス吐出口12の穴径が段階的に大きくなるように設定されている。

また、これらのセパレータ8E、8F、8Gにおいても、その内部流路13の壁面には、上述したアルミニウム拡散被膜処理が施されている。

[0030] 上記構成からなる固体酸化物形燃料電池においては、セパレータ外周部のガス導入口11aを介して燃料用マニホールドからセパレータ8の第1中空部10aに導入された燃料ガスが、セパレータ8の一方の積層面18aのほぼ全域に亘って設けられた多数のガス吐出口12aから、燃料極集電体6に向けてシャワー状に吐出されるとともに、セパレータ外周部のガス導入口11bを介して酸化剤用マニホールドからセパレータ

8の第2中空部10bに導入された酸化剤ガスが、セパレータ8の他方の積層面18bのほぼ全域に亘って設けられた多数のガス吐出口12bから、空気極集電体7に向けてシャワー状に吐出される。その結果、燃料ガスおよび酸化剤ガスが燃料極層3および空気極層4の全面にそれぞれ均一な分布で行き渡り、セル面内において発電反応が均一に行われることとなる。

[0031] 以上のように、本実施形態によれば、セパレータ8の積層面のほぼ全域に亘って複数のガス吐出口12が設けられ、それらガス吐出口12から反応用のガス(燃料ガス、酸化剤ガス)が、集電体6、7およびその先に位置する発電セル5の各電極に向けてシャワー状に吐出するようになっているので、セル面内におけるガス濃度を均一化することができる。したがって、電極反応の偏りを抑制して、セル面内における電流密度を均一化することができ、これにより、単位面積当たりの出力密度を増大させて発電セル5全体としての発電効率を大幅に向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化して、熱応力による発電セル5の破損を防止することができる。

[0032] なお、本実施形態においては、セパレータ8の積層面18a、18bの双方にガス吐出口12をそれぞれ複数設ける構成としたが、本発明はこれに限定されるものではなく、例えば、積層面の一方(燃料極側)にガス吐出口12を複数設けて他方の面(空気極側)の中心部にガス吐出口12を一つ設ける構成とすることも可能である。

[0033] [第2の実施形態]

図11は、本発明に係る固体酸化物形燃料電池の第2の実施形態を示すもので、上述した第1の実施形態と同一構成部分については、同一符号を付してその説明を簡略化する。

この実施形態の燃料電池スタック1は、上述した第1の実施形態と同様、シールレス構造の燃料電池スタックであって、固体電解質層2の両面に燃料極層3及び空気極層4を配した発電セル5と、燃料極層3の外側の燃料極集電体6と、空気極層4の外側の空気極集電体7と、各集電体6、7の外側のセパレータ8(最上層及び最下層のものは端板9である)とを順番に積層した構造を持つ。

[0034] セパレータ8は、発電セル5間を電氣的に接続するとともに、発電セル5に対して反応用のガスを供給する機能を有するもので、燃料ガスを燃料用マニホールド31から

導入して燃料極層3に対向する面から吐出させる内部流路20aと、酸化剤ガスとしての空気を酸化剤用マニホールド32から導入して空気極層4に対向する面から吐出させる内部流路20bとをそれぞれ備えている。

- [0035] 本実施形態のセパレータ8Hは、図12に示すように、略円盤状に形成された第1〜第3板状部材21、22、23を積層することによって構成され、それら板状部材21、22、23の母材としてステンレス鋼板(鉄基合金)が用いられるとともに、当該ステンレス鋼板の両面に銀または銅のメッキ(あるいは、銀合金または銅合金のメッキも可)が施されている。
- [0036] 第1板状部材21には、その径方向の一端から中心部に至る螺旋状の第1溝孔24と、径方向の他端から中心部に至る螺旋状の第2溝孔25とが互いに交差しないように形成されている。これら第1および第2溝孔24、25は、板状部材の積層方向にそれぞれ開口した状態となっている。
- [0037] 第2板状部材22には、第1溝孔24の終端部24aと対応する位置に、上記積層方向に貫通する燃料ガス吐出口26が設けられ、第3板状部材23には、第2溝孔25の終端部25aと対応する位置に、上記積層方向に貫通する酸化剤ガス吐出口27が設けられている。
- [0038] これら第1〜第3板状部材21、22、23を積層した状態においては、第1および第2溝孔24、25の開口が、第2および第3板状部材22、23によって覆われることにより、燃料ガスおよび酸化剤ガスの内部流路20a、20bがそれぞれ形成されるとともに、それら内部流路20a、20bに連通する状態で燃料ガス吐出口26および酸化剤ガス吐出口27が、集電体6、7と隣接する両端面の中央部にそれぞれ形成されるようになっている。
- [0039] 上記セパレータ8Hを製造するには、まず、SUSロールの両面に下地となるニッケルメッキを施した後、このニッケルメッキの上から銀または銅のメッキを施し、次いで、銀または銅のメッキが施されたSUSロールをプレス装置に供給して、当該プレス装置での打抜き成形により溝孔24、25または燃料ガス吐出口26、27を有する略円盤状の第1〜第3板状部材21、22、23をそれぞれ成形し、その後、成形した第1〜第3板状部材21、22、23を積層して、加熱処理を行うことにより、積層面におけるメッキを、

軟化または溶融させて、当該メッキにより板状部材21、22、23を貼り合わせる。これにより、第1〜第3板状部材21、22、23を一体化してなる上記セパレータ8Hを製造することができる。なお、上記製造方法では、銀または銅のメッキを施した後に、打抜き成形により第1〜第3板状部材21、22、23を成形するようにしたが、例えば、打抜き成形の後に銀または銅のメッキを施すことも可能であり、そうすることで、溝孔の側壁面等に対しても上記メッキによる薄膜を形成することが可能である。また、上記製造方法では、SUSロールの両面に下地としてニッケルメッキを施すようにしたが、第1〜第3板状部材21、22、23の表面に施すメッキとして銅を用いる場合には、あるいはニッケル基合金を母材として用いる場合には、下地となるニッケルメッキを省略することも可能である。また、上記製造方法では、上記第1〜第3板状部材21、22、23の溝孔24、25やガス吐出口26、27の加工をプレス装置による打ち抜き成形にて行うようにしたが、これに限るものではなく、エッチングによる成形も勿論可能である。

[0040] なお、端板9の場合には、第1溝孔24または第2溝孔25が形成された板状部材と、この板状部材に形成された溝孔の一方の開口（上面開口または下面開口）を完全に閉塞する板状部材と、燃料ガス吐出口26または酸化剤ガス吐出口27が形成された板状部材とをそれぞれ積層することにより、上記セパレータ8Hと同様に、燃料ガスの内部流路20aまたは酸化剤ガスの内部流路20bを形成することができる。

[0041] 上記構成からなる固体酸化物形燃料電池においては、燃料用マニホールド31からセパレータ8の内部流路20aに導入された燃料ガスが、セパレータ8の一方の端面の中心部に設けられたガス吐出口26から、燃料極集電体6に向けて吐出されるとともに、酸化剤用マニホールド32からセパレータ8の内部流路20bに導入された酸化剤ガスとしての空気が、セパレータ8の他方の端面の中心部に設けられたガス吐出口27から、空気極集電体7に向けて吐出される。その結果、燃料ガスおよび酸化剤ガスが、発電セル5の外周方向に拡散しながら燃料極層3および空気極層4の全面に良好な分布で行き渡り、各電極において発電反応が行われることとなる。

[0042] 以上のように、本実施形態によれば、板状部材21、22、23の母材としてステンレス鋼板（鉄基合金）を用い、当該ステンレス鋼板の両面に銀または銅のメッキを施したことにより、セパレータ8の表面だけでなく、内部流路20a、20bの壁面など、燃料ガス

に曝される部分すべてが、銀または銅の薄膜により覆われた状態となるので、セパレータ8の耐浸炭性を大幅に向上させることができ、燃料ガスとしてメタンガス等を用いる場合においても、浸炭によるセパレータ8の劣化を抑制することができる。また、板状部材21、22、23の両面に銀または銅のメッキを施すようにしたので、セパレータ8を加熱して、板状部材21、22、23の積層面における銀または銅のメッキを軟化または溶融させることにより、板状部材21、22、23どうしを容易に接合することができ、セパレータ8の生産効率の向上を図ることもできる。

[0043] また、上記実施形態では、積層する全ての板状部材21、22、23の両面に銀または銅のメッキを施すようにしたが、例えば、一例として図13に示すように、積層時にこれら複数の板状部材21、22、23が互いに接する面の何れか一方の面のみに銀または銅のメッキ層28を形成するようにしても良い。尚、板状部材がこのような片面メッキ構造であっても、上記同様、セパレータ8を加熱してメッキ層28を軟化または溶融させることにより板状部材同士を接合することが可能である。係る方法によれば、板状部材21、22、23のメッキ面積（すなわち、メッキ材の使用量）を少なくでき、コストダウンが図れる。

[0044] また、本実施形態において、特に反应用ガスに曝されている内部流路（すなわち、第1溝孔24、第2溝孔25、燃料ガス吐出口26、酸化剤ガス吐出口27）の壁面については、上記した銀または銅のメッキ処理に替え、その母材である鉄基合金の表面にアルミニウム拡散被膜処理を施すようにしても良い。このアルミニウム拡散被膜処理とは、母材表面にアルミニウムを拡散浸透させ、Fe-Al合金層を形成する金属表面処理のことで、例えば、母材をFe-Al合金粉と NH_4Cl 粉より成る調合剤とともに鋼製の密閉ケース内に埋め込み、加熱処理することにより行われる。このFe-Al合金層により、セパレータ8の耐高温酸化性、耐浸炭性をより一層向上させることができる。

尚、アルミニウム拡散被膜処理は、上記したセパレータ8の製造過程において、第1〜第3の各板状部材21、22、23を積層する前に各部材毎に行っても良く、あるいは、これら板状部材21、22、23を積層・接合して内部流路を形成した後に行っても良い。

[0045] また、本実施形態においては、第1〜第3板状部材21、22、23を積層することによ

ってセパレータ8Hを形成するようにしたが、板状部材の積層数は3に限られるものではなく、4以上とすることも可能である。また、本実施形態では、第1および第2溝孔24、25を一つの板状部材にまとめて形成するようにしたが、異なる板状部材に別個に形成するようにしてもよい。

- [0046] また、本実施形態では、各積層面(発電セル5と対向する面)の中心部に一つのガス吐出口を有するセパレータ8Hを例示したが、本発明はこれに限定されるものではなく、例えば、図4ー図10に示すように、積層面のほぼ全域に亘って複数のガス吐出口を有するセパレータ8A、8B、8C、8D、8E、8F、8Gについても同様に、鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金からなる母材の両面または片面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなる複数の板状部材(例えば、複数のガス吐出口12aが形成された板状部材、中空部10aまたは内部流路13に対応する溝孔が形成された板状部材、隔壁14を構成する板状部材、中空部10bまたは内部流路13に対応する溝孔が形成された板状部材、複数のガス吐出口12bが形成された板状部材など)を積層して構成することも可能である。

産業上の利用可能性

- [0047] 本発明によれば、セル面内におけるガス濃度の均一化を図ることができ、これによって、発電効率を向上させることができるとともに、セル面内における温度を均一化して発電セルの破損を防止することができる。さらに、燃料ガスとしてメタンガス等の炭化水素化合物を用いる場合においても、浸炭による劣化を抑制することができる。したがって、セパレータの耐久性を向上させることができ、セパレータおよび固体酸化物形燃料電池を長期に亘って安定的に使用することができる。

請求の範囲

- [1] 発電セルと交互に積層配置され、その積層面に、反応用のガスを吐出するガス吐出口を有する燃料電池用のセパレータであって、
上記ガス吐出口が上記積層面のほぼ全域に亘って複数設けられ、それらガス吐出口から上記反応用のガスが上記発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっていることを特徴とする燃料電池用のセパレータ。
- [2] 上記反応用のガスを受け入れる中空部を有し、当該中空部を介して上記反応用のガスが上記ガス吐出口の各々に導かれるようになっていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [3] 上記中空部内に上記反応用のガスを導入するガス導入口を有し、当該ガス導入口の位置から放射状に延びる複数の仮想線に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [4] 上記中空部内に上記反応用のガスを導入するガス導入口を有し、当該ガス導入口を中心とする複数の仮想同心円に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [5] 上記積層面の中心部から放射状に延びる複数の仮想線に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [6] 上記積層面の中央部に中心を有する複数の仮想同心円に沿って、上記ガス吐出口がそれぞれ配列されていることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [7] 上記反応用のガスを誘導する内部流路を有し、当該内部流路に沿って上記ガス吐出口が設けられていることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [8] 上記内部流路の上流側から下流側に向けて、上記ガス吐出口の穴径が大きくなるように設定されていることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [9] 上記内部流路は、外周部に起点を有する螺旋状の流路であることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用のセパレータ。
- [10] 上記内部流路は、上記積層面の径方向における一端から他端に向けて葛折り状

に形成されていることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [11] 上記内部流路は、外周部のガス導入口から放射状に分岐する複数の流路によって構成されていることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [12] 上記中空部の壁面に、アルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理を施してなることを特徴とする請求項2に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [13] 上記内部流路の壁面に、アルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理を施してなることを特徴とする請求項7に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [14] 溝孔が設けられた板状部材を含む複数の板状部材を積層してなり、それら板状部材の積層により上記溝孔の開口が覆われることによって、反応用のガスを誘導する内部流路または中空部が形成される構成とし、且つ、

上記板状部材の母材として鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を用いるとともに、当該母材の両面または片面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [15] 上記内部流路または上記中空部の壁面については、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキ処理に替えて、母材の表面にアルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理が施されていることを特徴とする請求項14に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [16] 発電セルとセパレータとを交互に積層してなる燃料電池スタックを有し、上記発電セルの各々に反応用のガスを供給して発電反応を生じさせる固体酸化物形燃料電池において、

上記セパレータには、上記発電セルと対向する積層面のほぼ全域に亘って、ガス吐出口が複数設けられ、それらガス吐出口から上記反応用のガスが上記発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっていることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

- [17] 溝孔が設けられた板状部材を含む複数の板状部材を積層してなり、それら板状部材の積層により上記溝孔の開口が覆われることによって、反応用のガスを誘導する内部流路が形成された燃料電池用のセパレータであって、

上記板状部材の母材として鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を用いる

とともに、当該母材の両面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなることを特徴とする燃料電池用のセパレータ。

- [18] 溝孔が設けられた板状部材を含む複数の板状部材を積層してなり、それら板状部材の積層により上記溝孔の開口が覆われることによって、反応用のガスを誘導する内部流路が形成された燃料電池用のセパレータであって、

上記板状部材の母材として鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を用いるとともに、積層時に、これら複数の板状部材が互いに接する面の何れか一方の面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなることを特徴とする燃料電池用のセパレータ。

- [19] 溝孔が設けられた板状部材を含む複数の板状部材を積層してなり、それら板状部材の積層により上記溝孔の開口が覆われることによって、反応用のガスを誘導する内部流路が形成される構成のセパレータの製造方法であって、

上記板状部材の母材となる鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金の両面または片面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施し、これをプレス加工することにより上記板状部材をそれぞれ成形し、その後、成形した板状部材を積層して、その積層面におけるメッキを軟化または溶融させることにより、それら板状部材を相互に接合して一体化するようにしたことを特徴とするセパレータの製造方法。

- [20] 上記内部流路の壁面については、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキ処理に替えて、その鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金の母材の表面にアルミニウムを拡散浸透させるアルミニウム拡散被膜処理を施してなることを特徴とする請求項17に記載の燃料電池用のセパレータ。

- [21] 発電セルとセパレータとを交互に積層してなる燃料電池スタックを有し、上記発電セルの各々に反応用のガスを供給して発電反応を生じさせる固体酸化物形燃料電池において、

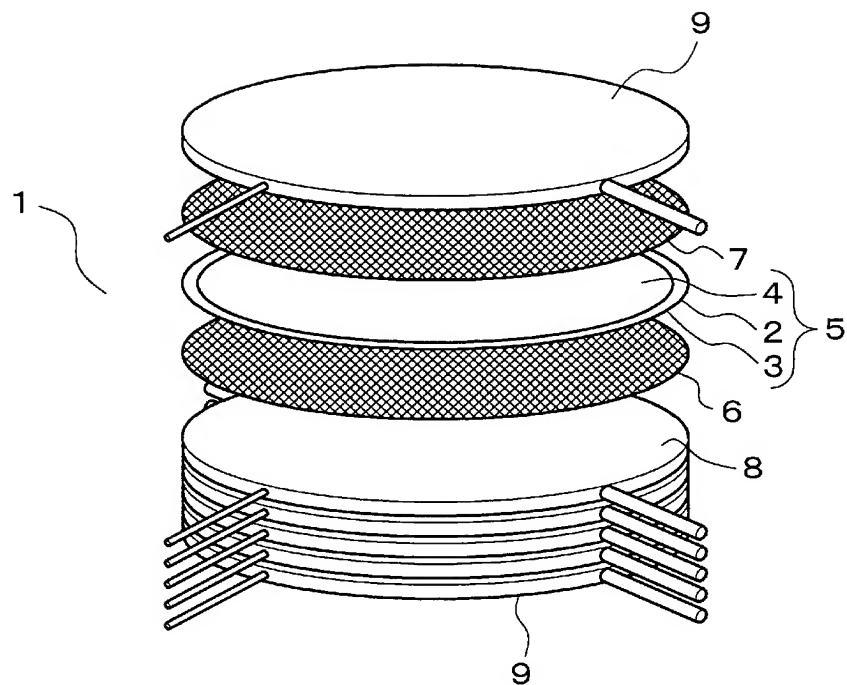
上記セパレータは、溝孔が設けられた板状部材を含む複数の板状部材を積層してなり、それら板状部材の積層により上記溝孔の開口が覆われることによって、反応用のガスを誘導する内部流路が形成される構成とし、且つ、

上記板状部材の母材として鉄基合金、ニッケル基合金またはクロム基合金を用いる

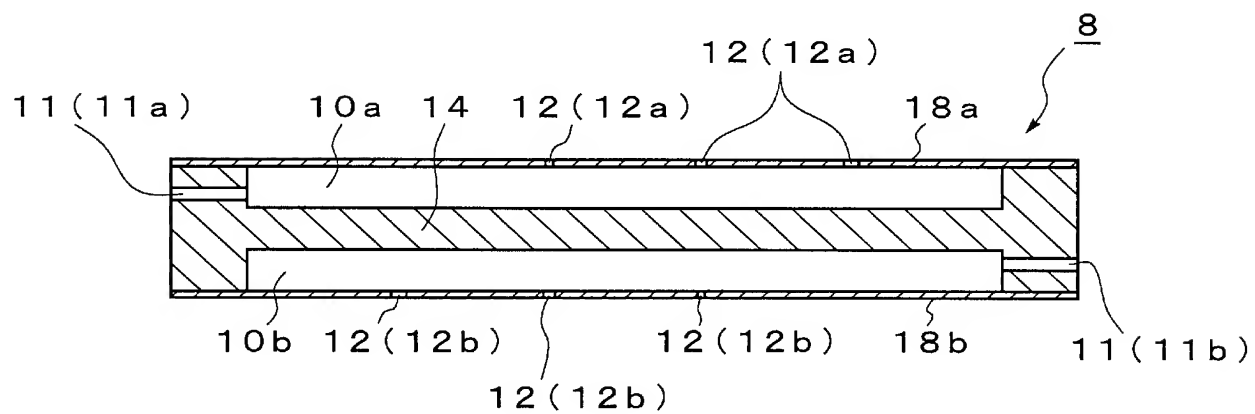
とともに、当該母材の両面または片面に、銀、銀合金、銅または銅合金のメッキを施してなることを特徴とする固体酸化物形燃料電池。

- [22] 上記セパレータには、上記発電セルと対向する積層面のほぼ全域に亘って、ガス吐出口が複数設けられ、それらガス吐出口から上記反応用のガスが上記発電セルに向けてシャワー状に吐出するようになっていることを特徴とする請求項21に記載の固体酸化物形燃料電池。

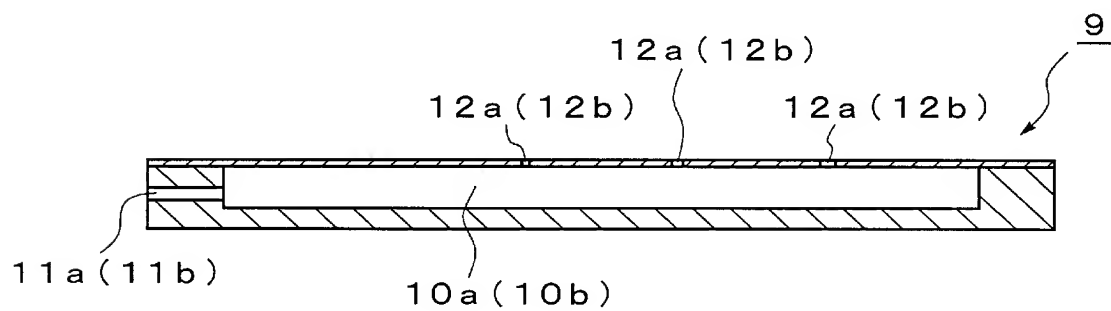
[図1]



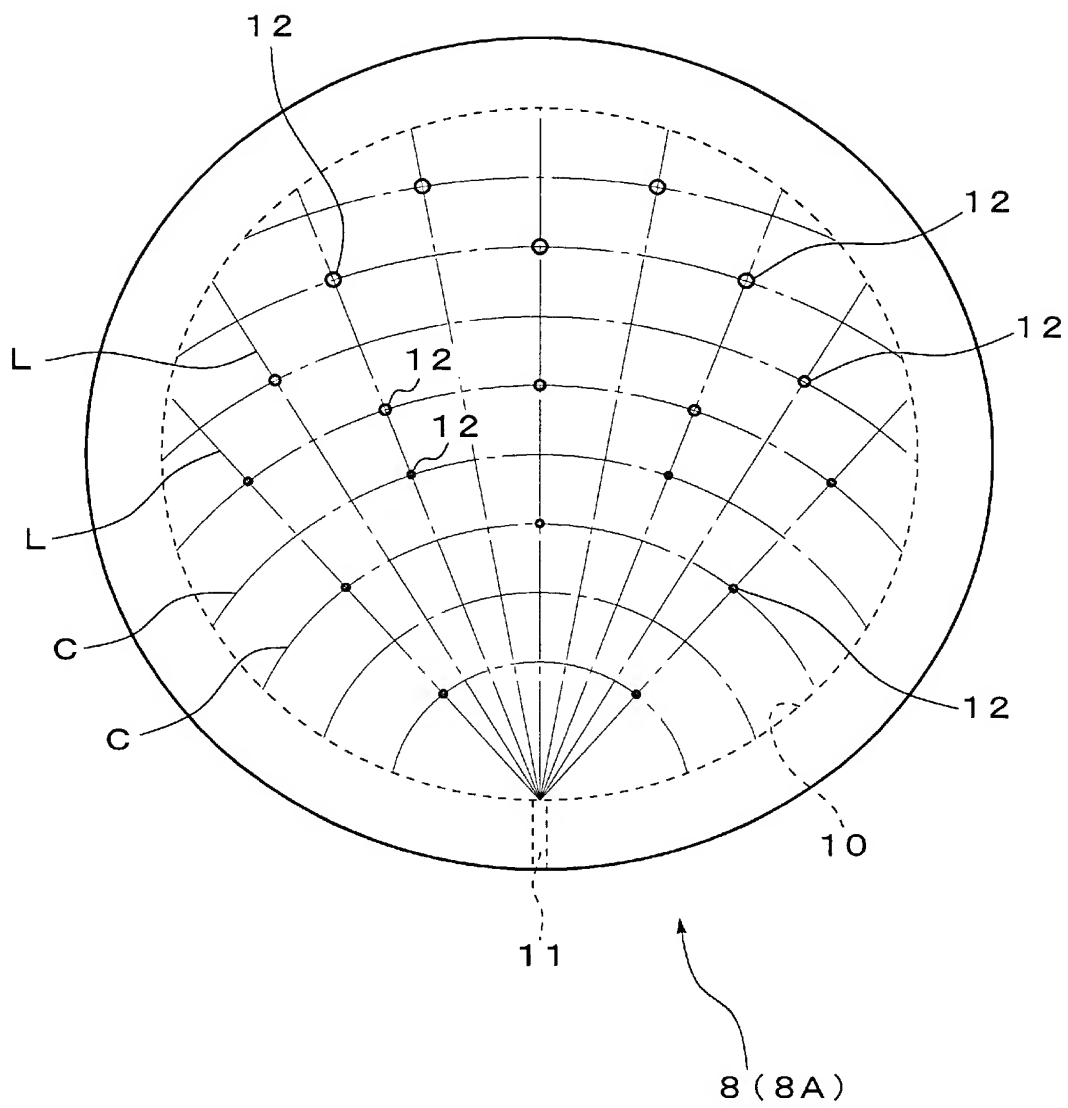
[図2]



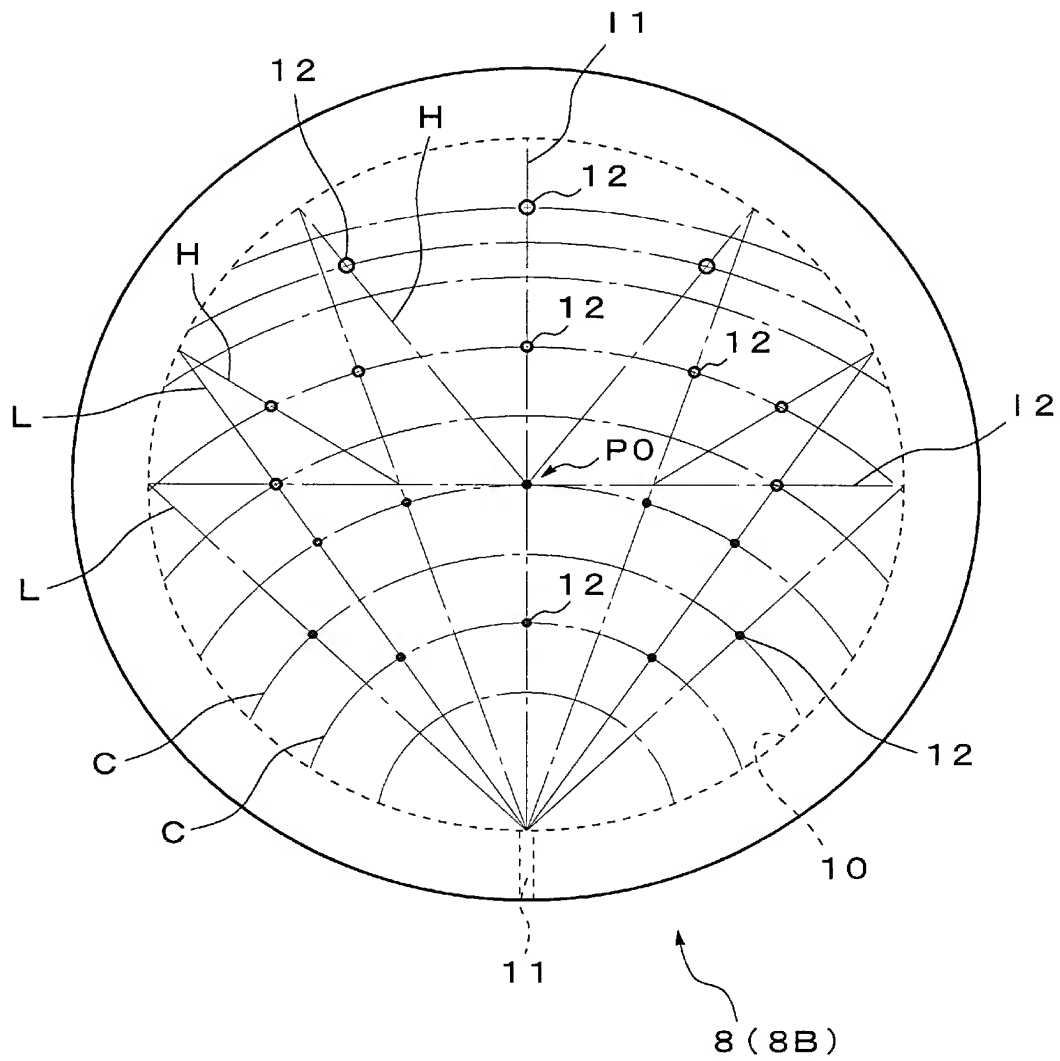
[図3]



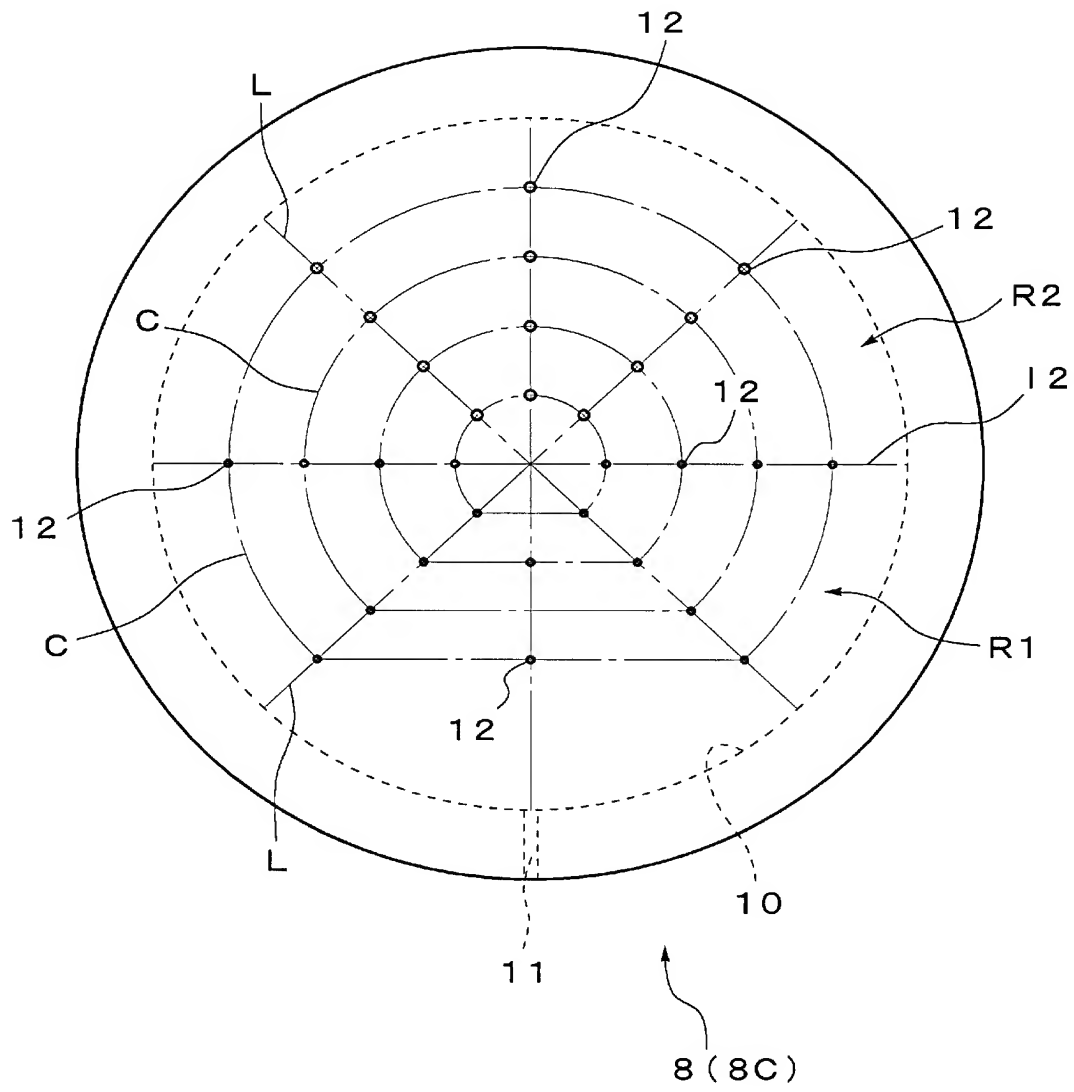
[図4]



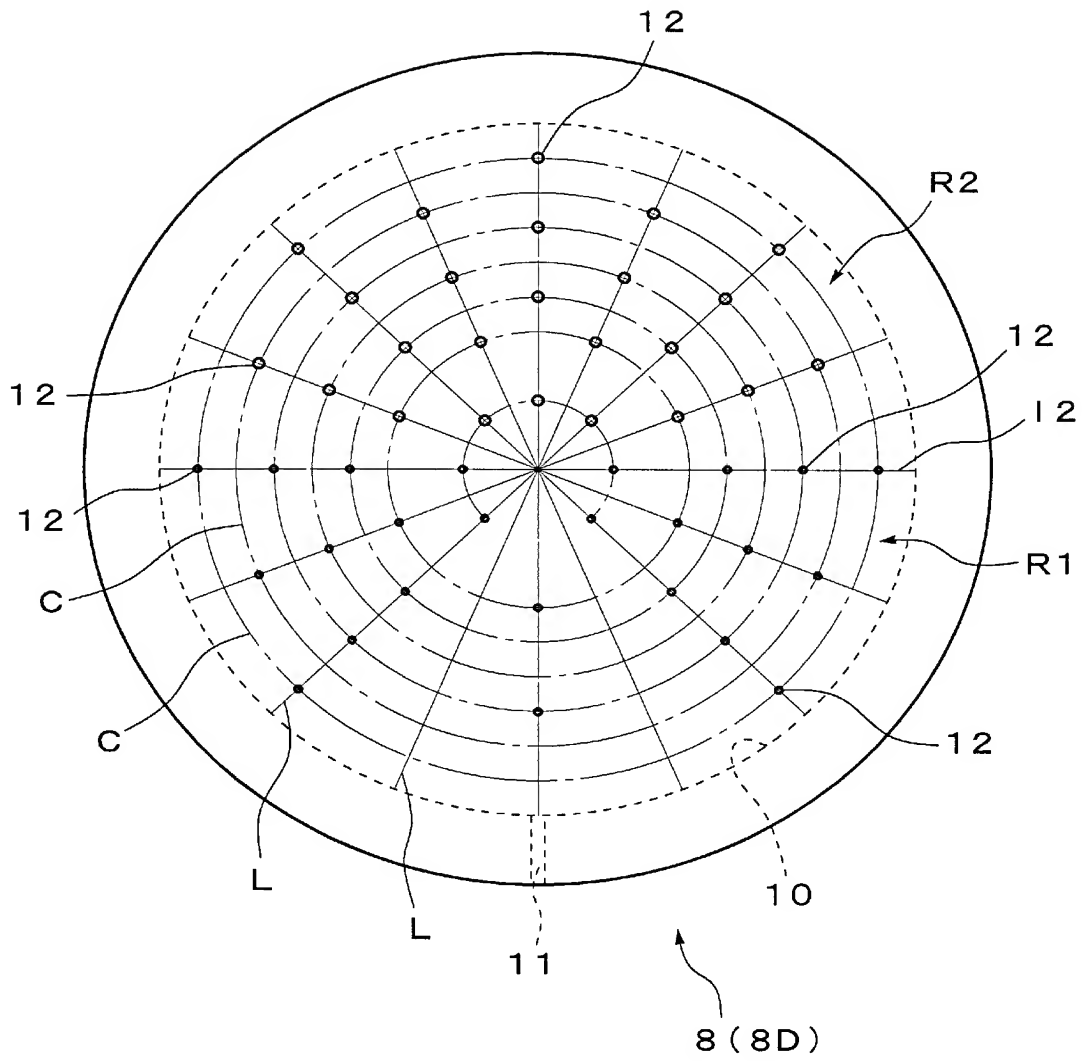
[図5]



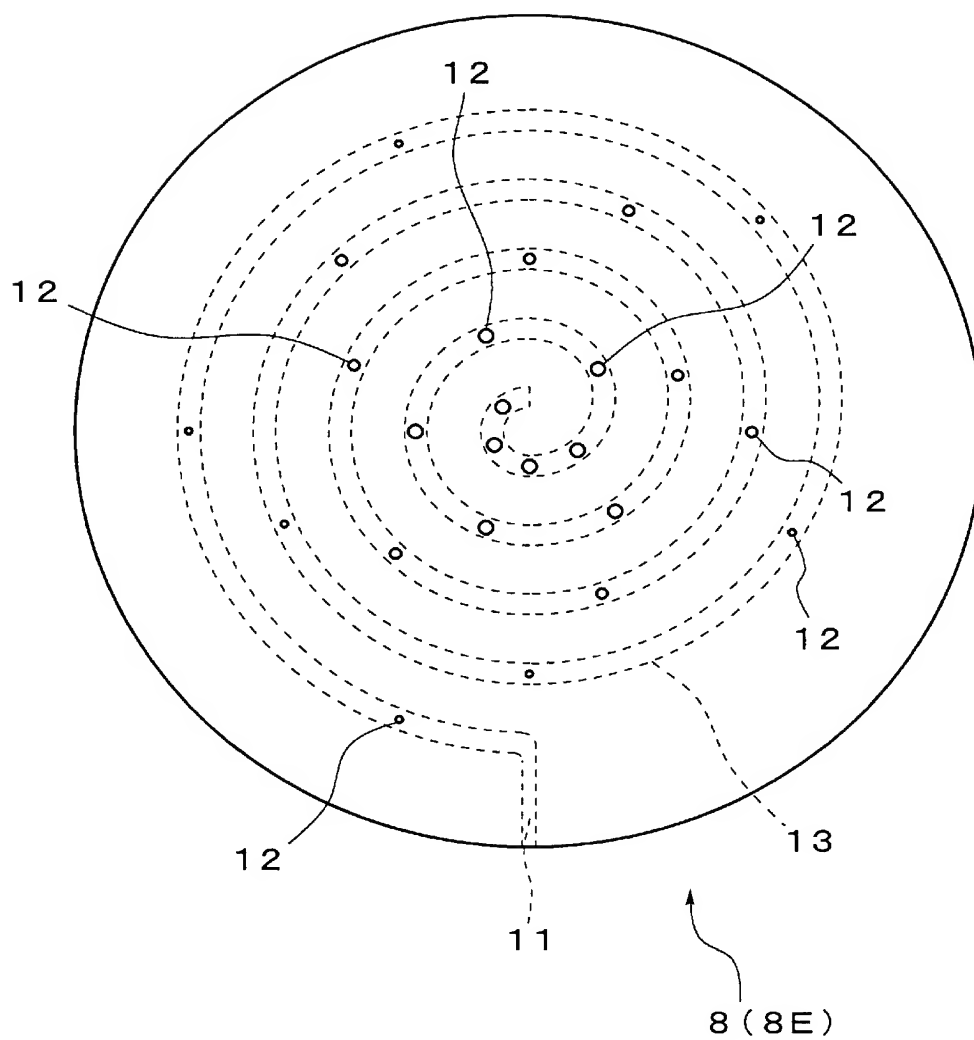
[図6]



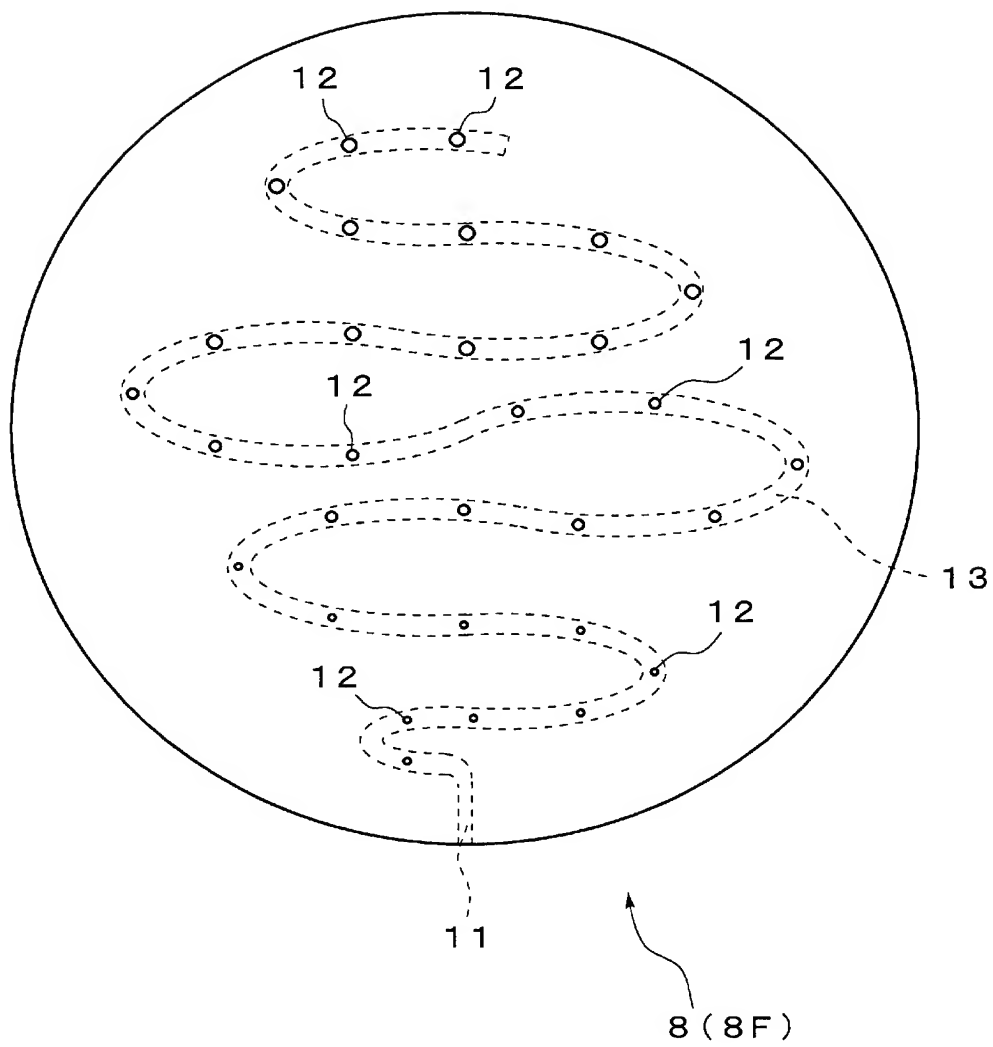
[図7]



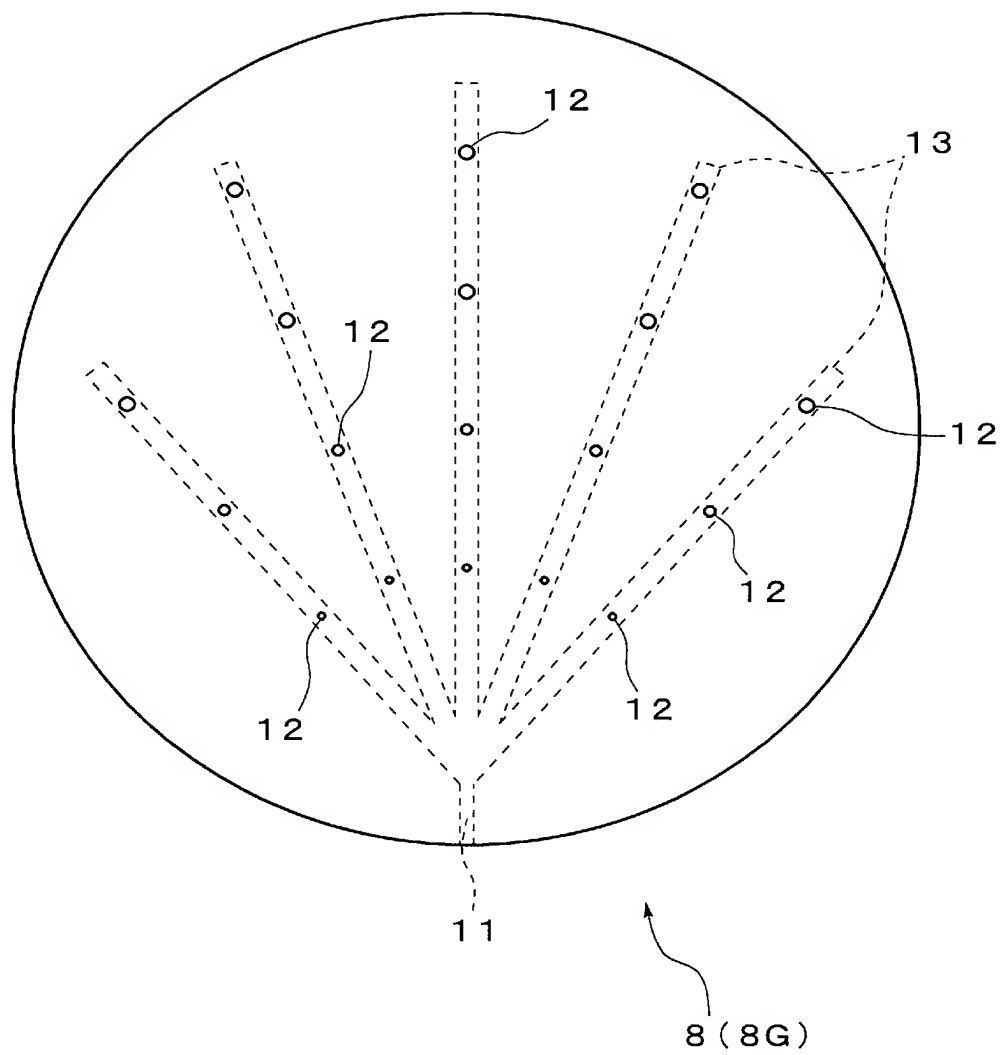
[図8]



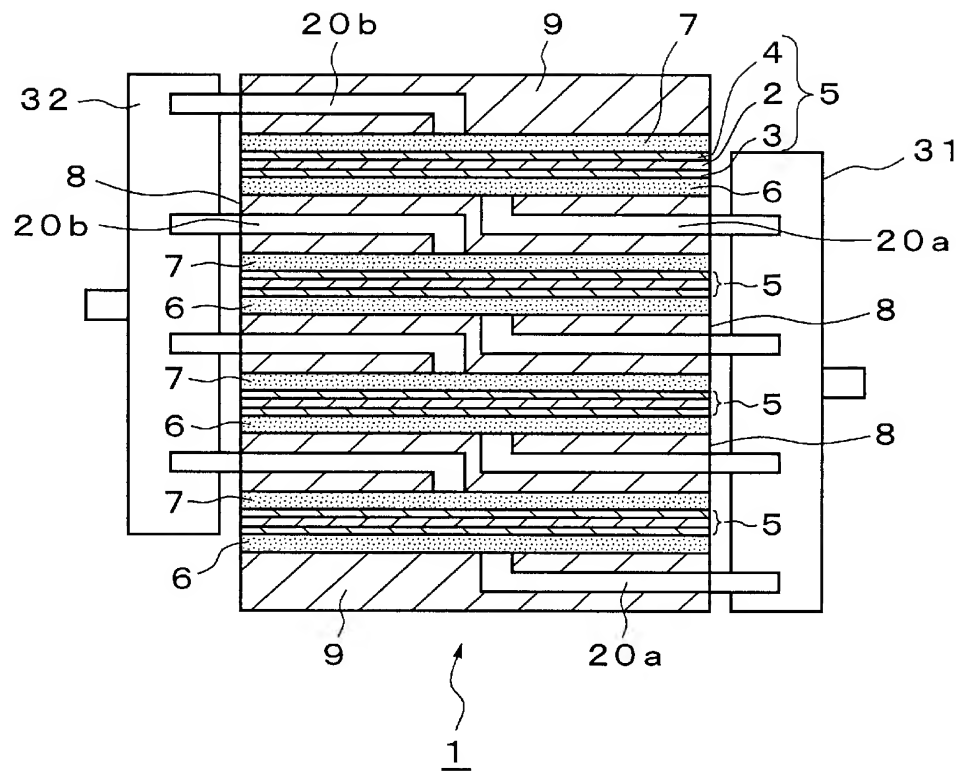
[図9]



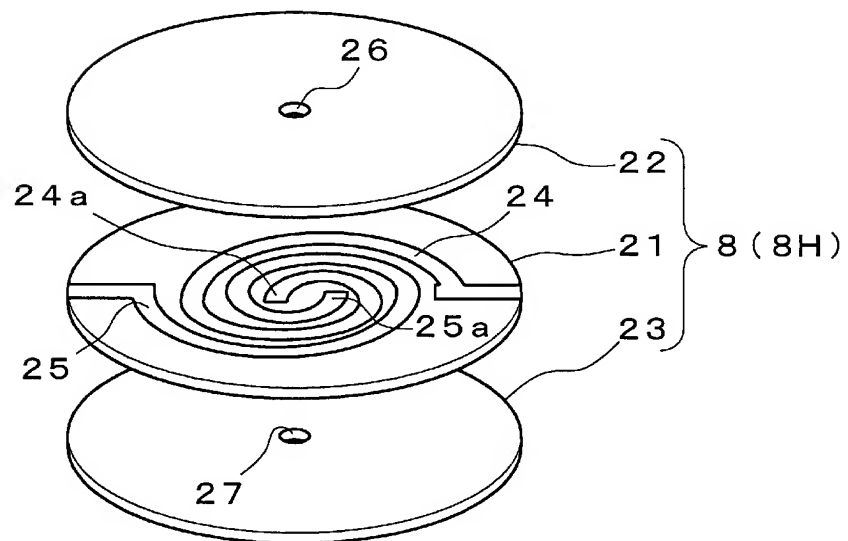
[図10]



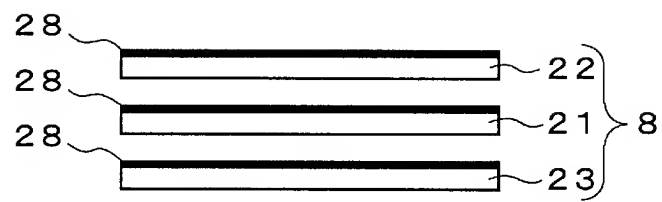
[図11]



[図12]



[図13]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/000295

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ H01M8/02, 8/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ H01M8/02, 8/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-203588 A (Mitsubishi Materials Corp.), 19 July, 2002 (19.07.02), Full text (Family: none)	1-11, 14, 16-18, 21, 22 12, 13, 15, 19, 20
Y	JP 59-75575 A (Hitachi, Ltd.), 28 April, 1984 (28.04.84), Full text (Family: none)	12, 13, 15, 20
Y	JP 2002-305005 A (Araco Corp.), 18 October, 2002 (18.10.02), Full text (Family: none)	19



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

11 April, 2005 (11.04.05)

Date of mailing of the international search report

26 April, 2005 (26.04.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl.⁷ H01M8/02, 8/12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl.⁷ H01M8/02, 8/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

W P I

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 2002-203588 A (三菱マテリアル株式会社) 2002.07.19, 全文 (ファミリーなし)	1-11, 14, 16-18, 21, 22
Y		12, 13, 15, 19, 20
Y	J P 59-75575 A (株式会社日立製作所) 1984.04.28, 全文 (ファミリーなし)	12, 13, 15, 20
Y	J P 2002-305005 A (アラコ株式会社) 2002.10.18, 全文 (ファミリーなし)	19

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

11.04.2005

国際調査報告の発送日

26.4.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

蛭田 敦

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

4 K

3237